

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月17日現在

機関番号：32675

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05047

研究課題名(和文) 粒子法による電子状態計算手法の開発

研究課題名(英文) Development of the electronic structure calculation using the particle method

研究代表者

善甫 康成 (ZEMPO, Yasunari)

法政大学・情報科学部・教授

研究者番号：60557859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：粒子法は計算点である粒子の配置に制約がない。この特徴を生かし電子状態の動的な変化を解析する手法を開発することが目的である。電子状態の動的な変化をとらえるために、時間依存の波動方程式を、粒子法との相性が非常に良いBohm形式を用いて解く手法を開発した。Bohm形式では波動関数の値が非常に小さいところでは数値的に不安定になるが、節のない基底状態と励起状態の線形結合をすることにより対応できるようにした。また粒子法において粒子分布の過度な集中や疎状態になる場合、精度が低下してしまうという欠点があるが、計算点の動的な追加および削除を行うことで、計算精度を維持することが可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子状態計算は実空間で解析するためには、一般に解析領域をあらかじめ等間隔のメッシュを切って、全域で計算が行われる。原子や分子では電子密度がほぼゼロに近い領域でも計算を行うことになり、かなり無駄な計算が行われており改善の余地があった。我々は、このような領域へ粒子(計算点)を配置することなく、電子状態に合わせ高精度な計算が必要な領域へ集中的に粒子を配置する改善をおこなった。更に電子状態の動的な変化をとらえるためには時間依存の波動方程式を解く必要があるが、粒子法との相性が非常に良いBohm形式を用いることで、計算点が自動的に移動する手法を開発し、計算精度を維持することが可能となった。

研究成果の概要(英文)：The particle method has no restriction on the particle arrangement, where the calculation is performed. The purpose is, by using this feature, to develop the method to analyze the dynamics of the electronic state. In order to describe the time evolution of the electronic state, we have developed a new method to solve the time-dependent wave equation, using the Bohmian that is very compatible with the particle method. In this form, there is also numerical instability in the region, where the value of the wave function was very small. However, we have successfully solved these difficulties by a linear combination of the ground state and the other excited states, where there is no node. When the particles are, on the other hand, too densely or sparsely distributed, the accuracy in the particle method are degraded. This also solved, by dynamic addition and deletion of the particles, to maintain the calculation accuracy.

研究分野：計算材料科学

キーワード：粒子法 SPH 電子状態計算 Bohm形式 線形結合 粒子の追加と削除

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1. 研究開始当初の背景

材料物性の解明を行うために電子励起状態計算は必須である。従来の電子状態計算では、平面波や Gaussian などの局在基底を用いる方法が一般的であったが、最近の計算機の発達とともに、より直感的に解析する実空間での解析手法も用いられるようになった。特に、高精度差分による実空間解析は、これまでの基底を用いる計算と遜色ないレベルに達している。直観的な理解を得ることができ、また規模の大きな系での電子状態の変化を把握しやすいからである。得られた結果が直感的に理解しやすいからである。

一方、実空間の解析では主に流体解析の分野で発展してきた粒子法がある。差分法(FD)はメッシュで解析領域を区切り、その節点に物理量を持たせるが、粒子法はメッシュの代わりに計算点(粒子)を用い、粒子に物理量を持たせる。この手法はメッシュを用いない手法であり、粒子間の位置関係は固定されないため、計算点の配置の自由度が高いという特徴がある。粒子法を電子状態に適用した場合、高精度な計算が必要な領域へ集中的に計算点を配置することで、効率的な計算を行うことができる(図1参照)。しかし、まだ未開発の部分も多く SPH を用いて電子状態を効率よく計算することに関する研究はほとんど行われていなかった。

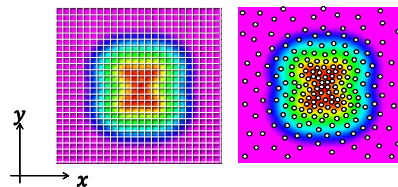


図1. 有限差分法と粒子法(SPH)での計算点の違い。

2. 研究の目的

流体等の解析で近年研究が進んでいる粒子法(SPH)を電子状態計算に適用する技術を開発することが目的である。実空間での計算では基礎方程式を解く際に、粒子法ではメッシュの代わりに計算点(粒子)を用い、粒子に物理量を持たせる。電子状態では差分法などのように、計算領域全体で一様に計算を行っている場合が多い。この手法を用いると、精度が必要な領域に積分点を集中させ、そうでない領域は粗く積分点を配置することで、計算効率を上げて電子状態計算を行うことができる。特に分子などの計算では大幅な計算効率の向上が見込める。粒子間の制約もないことから、並列化も容易となる。

3. 研究の方法

SPH を用いた実空間での電子状態解析手法の開発においては、以下の手順で行った。

(1) 解析手法開発の初期段階では、比較的検討がしやすい電子状態を選び、SPH での粒子の配置と精度の見極めを行う。また粒子分布の最適な配置を可能にする手法に関する検討を行う。精度の比較は既に開発済みの実空間プログラムにより行う。

(2) 様々な領域で電子状態計算に我々が開発しているプログラムを適用し、様々な物性値の計算を行うことで、粒子法の優位性、有効性を示す。これにより実効性の高いプログラムに仕上げる。

(3) 当該解析手法の開発にあたって、粒子法の特徴を生かす解析例をあげ、その精度について比較を行い手法の妥当性を検討する。

4. 研究成果

(1) 試験的な SPH での固有状態の解析

単純な原子について、密度汎関数法に基づく電子状態計算を H, He, Li などの原子について行った。手法に関する違いに注目して FD の結果と比較するため、粒子は等間隔に配置した。粒子間隔は $\Delta x = 0.2$ a.u. で一定とした。系の大きさは 16^3 a.u. の立方体である。なお比較は 1s 軌道エネルギーにて行った。(Li は一部 2s についても実施 [引用文献①])

その結果を図 2-1 に示す。若干の誤差はあるものの得られた結果はよく一致している。特に SPH の結果と FD の結果はよく一致していることがわかる。

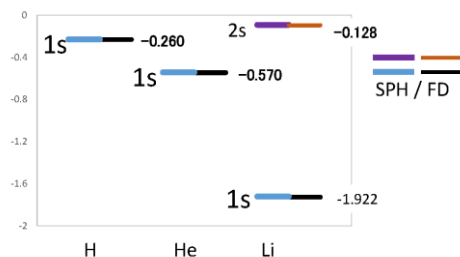


図 2-1. 軌道のエネルギー比較。
左が SPH、右が FD での結果。

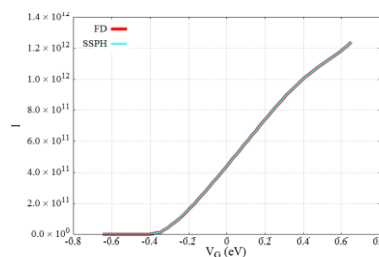


図 2-2. HEMT デバイスの I-V 特性。
SPH の結果と FD での結果がほぼ一致している。

また半導体デバイス HEMT の動作について SPH を利用した結果を図 2-2 に示す。これも同様に FD の結果とよく一致していた。手法として精度が要求される電子状態計算 FD と同様の精度で計算することが可能であることがこれらの結果から判明した。

(2) 粒子の配置に関する検討

上述の 2 例は固有状態を求める場合、つまり時間的に変化をしない系での解析である。SPH では粒子の配置に関して自由度がある。これについても検討を行った。試行的な計算として、上述の 2 ケースについて電子状態計算を等間隔配置から位置をランダムに数%程度まで移動させて計算を行っても精度に大きな影響はないことが分かった。これにより SPH の計算手法が精度の上からも問題ないことがわかった。

しかしながら、この場合に解くべき方程式は時間に依存しない Schrödinger 方程式である。つまり粒子は固有状態を計算する点であり、動かすための点ではないので、粒子を精度が必要な点に移動させることはできない。電子密度が高い場所に粒子を自動的に配置することはできない。この点を解決するために考案したのが次節の手法である。

(3) Bohm 形式の活用による粒子の移動

固有状態が決定された状態に、電子状態へ外部からの摂動が加わる場合を想定して、その電子状態を解析する手法について検討を行った。この場合には時間に依存する Schrödinger 方程式を解く必要がある。通常的时间発展の形式として数値計算上 Δt の間に波動関数 $\psi(t)$ の時間発展は $\psi(t + \Delta t) = \exp(-iH\Delta t)\psi(t)$ を解くことになる。実際、実時間の時間依存密度汎関数法ではこの手法で時間発展をさせている。

一方、電子状態が波束として移動する場合を考慮すると、Bohm 形式による量子トラジェクトリ法がある。我々はこの手法と粒子法を直接組み合わせ、時間発展をさせる手法を考案した。Bohm 形式では $\psi(x, t) = R(x, t)e^{S(x, t)}$ として時間発展をさせる。この形で時間依存の Schrödinger 方程式を解くと、 $S(x, t)$ に関する Hamilton-Jacobi の古典的な運動方程式および電子の密度 $\rho = |\psi|^2$ に関する連続の式が得られる。違いはポテンシャル部分が古典的なポテンシャルに加え、量子ポテンシャル $Q = -\nabla^2 R/R$ が加わっているところである。連続の式が得られることから Lagrange 描像が可能になる。つまり波束の動きに沿って粒子ごとの物理量の時間発展を観測することが可能である。以降はその結果を示したものである。

まず良く知られた基本的な現象を考案した手法で解析し、解析解との比較を行い精度の確認を行った。図 3 は二重スリットによる波束の干渉を粒子法で解析したものである。この系では二重スリットの遠方上（この図では紙面の裏側）に 1 つの波源があると仮定し、スリットに到達したときは、ほぼ平面波とみなせるとする。その結果スリットからは波源を同一とする Gaussian がそれぞれ放出されることになる。

図 3(上)は二重スリットから出てくる独立した波束が時間とともに干渉していく様子がわかる。図 3(中)は、その干渉している波束の様子を電子密度と、この干渉の主な要因である量子ポテンシャルを示している。これらの結果について、図 3(下)に示した解析解と比較したところ、非常によく一致していることがわかった。

(4) 粒子の安定な移動法

ここでは Bohm 形式で数値的に不安定となる $R(x, t) \sim 0$ で $\nabla^2 R/R$ の計算をしなければならないという問題がある。これを解決するために以下 2 つの手法を導入した。これらの手法により時間発展に対して堅牢な解析法となることがわかった。

① 非常に大きな 1 つの Gaussian 波束とスリット放出された干渉する波束との線形結合について時間発展を行い、別途計算しておいた 1 つの Gaussian 波束の結果を差引くことで、干渉を安定に表現することができた。これにより上述の $R \sim 0$ 近傍での数値的な不安定を取り除くことが可能となった。もちろん別途、大きな 1 つの Gaussian 波束の時間発展の計算を行っておく必要がある。

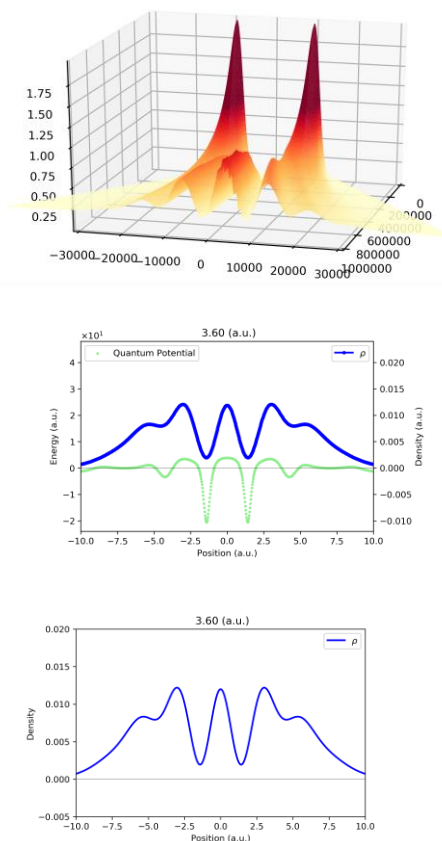


図 3. 二重スリットによる干渉。電子密度(上)および波束の干渉の様子と量子ポテンシャル(中)、この干渉について当該する解析解(下)。

② 干渉が発生する場所付近では粒子が非常に疎あるいは密に偏ることが起こる。粒子法では粒子が接近し過ぎる場合や粒子間の距離が極端に広がる場合、微分の精度を電子状態計算レベルの精度に解析に保つことは難しい。このような状況を避け精度を上げるため、粒子の分布が疎な場合は粒子の追加を行い、粒子の分布が集中している場合には粒子の消去を動的に行う手法を導入した。これは粒子があくまで計算点であるという特徴を用いたものである。

(5) 調和ポテンシャルの中での波束の運動

上述の手法を用いて調和ポテンシャルの中での Gaussian 波束の運動について粒子法を用い解析した。図 4 は粒子の初期配置と波束の密度を表したものである。Gaussian 波束のある場所のみ粒子を配置した。また密度が高い領域に密に配置したものである。ポテンシャルの底を

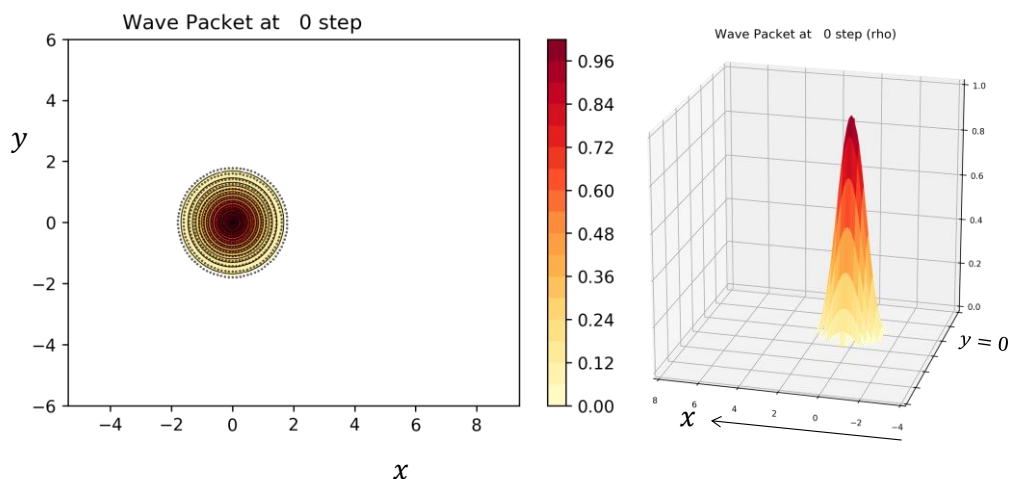


図 4. 2D 調和ポテンシャルの中での Gaussian 波束の初期配置。粒子配置と電子密度(左)および電子密度(右)。

$(x, y) = (2, 0)$ として時間発展をさせたものが図 5 である。粒子の速度を矢印で表している。Gaussian が変形することなく十分な時間にわたり時間発展を行うことが可能となった。もちろん粒子を等間隔なメッシュ位置に配置してもランダムに配置しても時間発展を行うことが可能であった。これは粒子間の制約がない粒子法の特徴によるものである。

調和ポテンシャルの中心に Gaussian 波束を置いた場合、時間発展をさせても Gaussian 波束とそれを表す粒子(計算点)の移動は生じない。またポテンシャルの底のまわりを運動させることも行ったが、同様に安定して時間発展を行うことができた。

以上のように、粒子法と量子トラジェクトリ法を組み合わせることで粒子と量子波束の動きを的確にとらえることが可能となった。今後はこの手法を用いて更に応用領域を広げることに努めていく予定である。

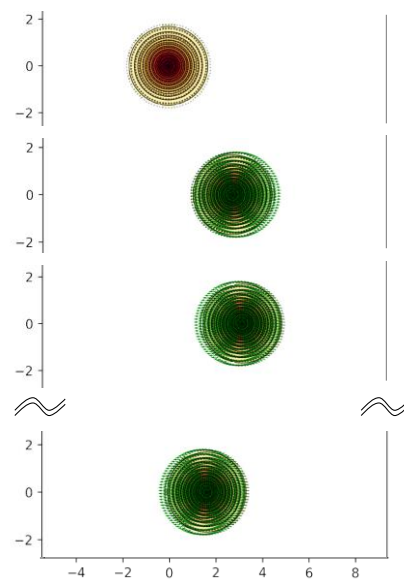


図 5. 調和ポテンシャル内での Gaussian 波束の振動。ポテンシャルの底の位置は $x = 2$ である。

<引用文献>

① [Yasunari Zempo](#), and Soichiro Sugimoto, “Development of the SSPH Method for Real-Space Electronic Structure Calculations,” J. Phys.: Conf. Ser., **640**, 012031 (2015), doi: 10.1088/1742-6596/640/1/012031

5. 主な発表論文等

主要なもののみ掲載した。

[雑誌論文] (計 1 件)

① K. Kitayama, M. Toogoshi, and [Y. Zempo](#), “Device Simulation using Symmetric Smoothed Particle Hydrodynamics,” J. Phys.: Conf. Ser., **905**, 012011 (2017), doi: 10.1088/1742-6596/905/1/012011 [査読有]

〔学会発表〕（計 6 件）

- ① 廣野 史明、岩沢 美佐子、狩野 覚、善甫 康成、「粒子法による量子波束の数値解析」、コンピュータ化学会 2019 年度春季年会、2019 年 6 月 6 日～ 7 日、東京工業大学（東京都、目黒区）
- ② 廣野 史明、岩沢 美佐子、狩野 覚、善甫 康成、「粒子法による波束の干渉の数値解析」、コンピュータ化学会 2018 年度秋季年会、2018 年 11 月 3 日～4 日、弘前大学（青森県、弘前市）
- ③ 廣野 史明、岩沢 美佐子、狩野 覚、善甫 康成、「粒子法と Bohm 形式による波束の干渉の数値解析」、日本応用数理学会 2018 年度年会、2018 年 9 月 3 日～5 日、名古屋大学東山キャンパス（愛知県、名古屋市）
- ④ 廣野 史明、狩野 覚、善甫 康成、「Bohm 形式による電子状態計算」、日本コンピュータ化学会 2017 年度秋季年会、2017 年 10 月 21 日～22 日、くまもと県民交流館（熊本県、熊本市）
- ⑤ 北山 清章、遠越 光輝、善甫 康成、「SSPH によるデバイスシミュレーション」、日本コンピュータ化学会 2016 年度秋季年会、2016 年 10 月 22 日～23 日、島根大学（島根県、松江市）
- ⑥ K. Kitayama, M. Toogoshi, and Y. Zempo, “Device Simulation using Symmetric Smoothed Particle Hydrodynamics,” XXVIII IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2016), July 10-14, 2016, Gauteng, South Africa

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：狩野 覚

ローマ字氏名：(KANO, satoru S)

所属研究機関名：法政大学

部局名：情報科学部

職名：教授

研究者番号（8 桁）：30107700

研究分担者氏名：岩沢 美佐子

ローマ字氏名：(IWASAWA, misako)

所属研究機関名：法政大学

部局名：理工学部

職名：助手

研究者番号（8 桁）：40566816

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：石田 雅也

ローマ字氏名：(ISHIDA, masaya)

研究協力者氏名：秋野 喜彦

ローマ字氏名：(AKINO, nobuhiko)